


 INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
 INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation ⁶ : C07D 413/12, 273/00, 413/14, A01N 43/88	A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 97/2189 (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 31. Juli 1997 (31.07.97)
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP97/00151 (22) Internationales Anmeldedatum: 15. Januar 1997 (15.01.97) (30) Prioritätsdaten: 196 02 095.6 22. Januar 1996 (22.01.96) DE (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE). (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): HEINEMANN, Ulrich [DE/DE]; Am Sonnenhang 1, D-42799 Leichlingen (DE). GAYER, Herbert [AT/DE]; Sandstrasse 66, D-40789 Monheim (DE). GERDES, Peter [DE/DE]; Waldstrasse 75, D-52080 Aachen (DE). KRÜGER, Bernd-Wieland [DE/DE]; Am Vorend 52, D-51467 Bergisch Gladbach (DE). GALLENKAMP, Bernd [DE/DE]; Paul-Ehrlich- Strasse 13, D-42113 Wuppertal (DE). STELZER, Uwe [DE/DE]; Adolf-Kolping-Strasse 22 a, D-51399 Burscheid (DE). MARHOLD, Albrecht [DE/DE]; Carl-Duisberg- Strasse 329, D-51373 Leverkusen (DE). TIEMANN, Ralf [DE/DE]; Ernst-Ludwig-Kirchner-Strasse 5, D-51375 Leve- rhusen (DE). DUTZMANN, Stefan [DE/DE]; Kosenberg 10, D-40721 Hilden (DE). HANSSLER, Gerd [DE/DE];	Am Arenzberg 58a, D-51381 Leverkusen (DE). STENZEL, Klaus [DE/DE]; Seesener Strasse 17, D-40595 Düsseldorf (DE). (74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGE- SELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE). (81) Bestimmungsstaaten: AU, BB, BG, BR, BY, CA, CN, CZ, HU, IL, JP, KR, KZ, LK, MX, NO, NZ, PL, RO, RU, SK, TR, UA, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG). Veröffentlicht Mit internationalem Recherchenbericht.	
(54) Title: HALOGEN PYRIMIDINES AND ITS USE THEREOF AS PARASITE ABATEMENT MEANS		
(54) Bezeichnung: HALOGENPYRIMIDINE UND IHRE VERWENDUNG ALS SCHÄDLINGSBEKÄMPFUNGSMITTEL		
(57) Abstract		
<p>Compounds of formula (I) in which: A is for alkanediyl optionally substituted as necessary; R stands for cycloalkyl, aryl or benzo condensed heterocyclyl, each of this group optionally being substituted; E stands for -CH= or nitrogen; Q is for oxygen, sulphur, -CH₂-O-, a single bond or for a nitrogen atom substituted by alkyl as necessary; X stands for halogen.</p> <div data-bbox="507 756 777 908"> </div> <p style="text-align: right;">(I)</p>		
(57) Zusammenfassung Verbindungen der Formel (I), in welcher A für gegebenenfalls substituiertes Alkanediyl steht, R für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkyl, Aryl oder benzokondensiertes Heterocyclyl steht, E für -CH= oder Stickstoff steht, Q für Sauerstoff, Schwefel, -CH ₂ -O-, eine Einfachbindung oder für ein gegebenenfalls durch Alkyl substituiertes Stickstoffatom steht und X für Halogen steht.		

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AM	Armenien	GB	Vereinigtes Königreich	MX	Mexiko
AT	Österreich	GE	Georgien	NE	Niger
AU	Australien	GN	Guinea	NL	Niederlande
BB	Barbados	GR	Griechenland	NO	Norwegen
BE	Belgien	HU	Ungarn	NZ	Neuseeland
BF	Burkina Faso	IE	Irland	PL	Polen
BG	Bulgarien	IT	Italien	PT	Portugal
BJ	Benin	JP	Japan	RO	Rumänien
BR	Brasilien	KE	Kenya	RU	Russische Föderation
BY	Belarus	KG	Kirgisistan	SD	Sudan
CA	Kanada	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	SE	Schweden
CF	Zentrale Afrikanische Republik	KR	Republik Korea	SG	Singapur
CG	Kongo	KZ	Kasachstan	SI	Slowenien
CH	Schweiz	LJ	Litauen	SK	Slowakei
CI	Côte d'Ivoire	LK	Sri Lanka	SN	Senegal
CM	Kamerun	LR	Liberia	SZ	Swasiland
CN	China	LX	Litauen	TD	Tschad
CS	Tschechoslowakei	LU	Luxemburg	TG	Togo
CZ	Tschechische Republik	LV	Lettland	TJ	Tadschikistan
DE	Deutschland	MC	Monaco	TT	Trinidad und Tobago
DK	Dänemark	MD	Republik Moldau	UA	Ukraine
EE	Estland	MG	Madagaskar	UG	Uganda
ES	Spanien	ML	Mali	US	Vereinigte Staaten von Amerika
FI	Finnland	MN	Mongolei	UZ	Usbekistan
FR	Frankreich	MR	Mauretanien	VN	Vietnam
GA	Gabon	MW	Malawi		

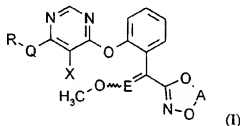
HALOGENPYRIMIDINE UND IHRE VERWENDUNG ALS SCHÄDLINGSBEKÄMPFUNGSMITTEL.

Die Erfindung betrifft neue Halogenpyrimidine, ein Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Schädlingsbekämpfungsmittel

Bestimmte Pyrimidine mit ähnlichem Substitutionsmuster sind bereits bekannt geworden (WO-A 9504728).

Die Wirkung dieser vorbekannten Verbindungen ist jedoch insbesondere bei niedrigen Aufwandsmengen und Konzentrationen nicht in allen Anwendungsgebieten völlig zufriedenstellend.

Es wurden nun die neuen Halogenpyrimidine der allgemeinen Formel (I) gefunden,



in welcher

A für gegebenenfalls substituiertes AlkandiyI steht,

R für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkyl, Aryl oder benzokondensiertes Heterocyclyl steht,

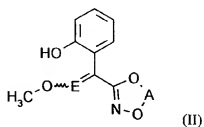
E für -CH= oder Stickstoff steht,

Q für Sauerstoff, Schwefel, -CH₂-O-, eine Einfachbindung oder für ein gegebenenfalls durch Alkyl substituiertes Stickstoffatom steht und

X für Halogen steht.

Weiterhin wurde gefunden, daß man die neuen Halogenpyrimidine der allgemeinen Formel (I) erhält, wenn man

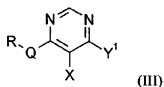
a) Hydroxyverbindungen der allgemeinen Formel (II)



in welcher

A und E die oben angegebenen Bedeutungen haben,

5 mit einem substituierten Halogenpyrimidin der allgemeinen Formel (III),



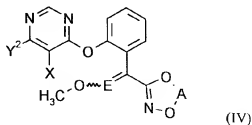
in welcher

R, Q und X die oben angegebenen Bedeutungen haben und

Y¹ für Halogen steht,

10 gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, umgesetzt, oder wenn man

b) Phenoxyypyrimidine der allgemeinen Formel (IV)



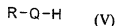
in welcher

A, E und X die oben angegebenen Bedeutungen haben und

Y² für Halogen steht,

mit einer Ringverbindung der allgemeinen Formel (V),

5



in welcher

R und Q die oben angegebenen Bedeutungen haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, umgesetzt.

10

Schließlich wurde gefunden, daß die neuen Halogenpyrimidine der allgemeinen Formel (I) sehr starke fungizide Wirkung zeigen.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen können gegebenenfalls als Mischungen verschiedener möglicher isomerer Formen, insbesondere von Stereoisomeren, wie z. B. E- und Z-, vorliegen. Es werden sowohl die E- als auch die Z-Isomeren, wie auch beliebige Mischungen dieser Isomeren, beansprucht.

15

Gegenstand der Erfindung sind vorzugsweise Verbindungen der Formel (I), in welcher

A für gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkandiyl mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen steht,

20

R für jeweils gegebenenfalls einfach bis zweifach durch Halogen, Alkyl, oder Hydroxy substituiertes Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen;

für gegebenenfalls durch Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Benzodioxanyl;

oder für jeweils gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl oder Naphthyl steht, wobei die möglichen Substituenten vorzugsweise aus der nachstehenden Aufzählung ausgewählt sind.

5 Halogen, Cyano, Nitro, Amino, Hydroxy, Formyl, Carboxy, Carbamoyl, Thio-carbamoyl;

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Hydroxyalkyl, Oxoalkyl, Alkoxy, Alkoxyalkyl, Alkylthioalkyl, Dialkoxyalkyl, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 8 Kohlenstoffatomen;

10 jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl oder Alkenyloxy mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen;


jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl oder Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen;

15 jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkenyl oder Halogenalkenyloxy mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 11 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen;

20 jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylamino, Dialkylamino, Alkyl-carbonyl, Alkylcarbonyloxy, Alkoxycarbonyl, Alkylaminocarbonyl, Dialkylaminocarbonyl, Arylalkylaminocarbonyl, Dialkylaminocarbonyloxy, Alkenyl-carbonyl oder Alkynylcarbonyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den jeweiligen Kohlenwasserstoffketten;

Cycloalkyl oder Cycloalkyloxy mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen;

25 jeweils gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Oxo, Methyl, Trifluormethyl oder Ethyl substituiertes, jeweils zweifach verknüpftes Alkylen mit 3 oder 4 Kohlenstoffatomen, Oxyalkylen mit 2 oder 3 Kohlenstoffatomen oder Dioxyalkylen mit 1 oder 2 Kohlenstoffatomen;

oder eine Gruppierung  , worin

A¹ für Wasserstoff, Hydroxy oder Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder Cycloalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen steht und

A² für Hydroxy, Amino, Methylamino, Phenyl, Benzyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Hydroxy, Alkoxy, Alkylthio, Alkylamino, Dialkylamino oder Phenyl substituiertes Alkyl oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, oder für Alkenyloxy oder Alkinyloxy mit jeweils 2 bis 4 Kohlenstoffatomen steht,

sowie jeweils gegebenenfalls im Ringteil einfach bis dreifach durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Phenyl, Phenoxy, Phenylthio, Benzoyl, Benzoyl-ethenyl, Cinnamoyl, Heterocyclyl, Phenylalkyl, Phenylalkyloxy, Phenylalkylthio oder Heterocyclylalkyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen in den jeweiligen Alkylteilen,

E für -CH= oder Stickstoff steht,

Q für Sauerstoff, Schwefel, eine Einfachbindung oder für ein gegebenenfalls durch Methyl, Ethyl oder n- oder i-Propyl substituiertes Stickstoffatom steht und

X für Fluor, Chlor, Brom oder Iod steht.

In den Definitionen sind die gesättigten oder ungesättigten Kohlenwasserstoffketten, wie Alkyl, Alkandiyl, Alkenyl oder Alkinyl, auch in Verknüpfung mit Heteroatomen, wie beispielsweise in Alkoxy, Alkylthio oder Alkylamino, jeweils geradkettig oder verzweigt.

Die Erfindung betrifft insbesondere Verbindungen der Formel (I), in welcher


A für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Methylen, Ethan-1,1-diyl, Ethan-1,2-diyl, Propan-1,1-diyl, Propan-1,2-diyl, Propan-1,3-diyl, Butan-1,1-diyl, Butan-1,2-diyl, Butan-1,3-diyl oder Butan-2,2-diyl, steht

- R für jeweils gegebenenfalls einfach bis zweifach durch Fluor, Chlor, Methyl, Ethyl oder Hydroxy substituiertes Cyclopentyl oder Cyclohexyl;
- für gegebenenfalls durch Methyl oder Ethyl substituiertes Benzodioxanyl,
- oder für jeweils gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl oder Naphthyl steht, wobei die möglichen Substituenten vorzugsweise aus der nachstehenden Aufzählung ausgewählt sind:
- Fluor, Chlor, Brom, Iod, Cyano, Nitro, Amino, Hydroxy, Formyl, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl,
- Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, 1-, 2-, 3-, neo-Pentyl, 1-, 2-, 3-, 4-(2-Methylbutyl), 1-, 2-, 3-Hexyl, 1-, 2-, 3-, 4-, 5-(2-Methylpentyl), 1-, 2-, 3-(3-Methylpentyl), 2-Ethylbutyl, 1-, 3-, 4-(2,2-Dimethylbutyl), 1-, 2-(2,3-Dimethylbutyl), Hydroxymethyl, Hydroxyethyl, 3-Oxobutyl, Methoxymethyl, Dimethoxymethyl,
- Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy,
- Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl,
- Vinyl, Allyl, 2-Methylallyl, Propen-1-yl, Crotonyl, Propargyl, Vinyloxy, Allyloxy, 2-Methylallyloxy, Propen-1-yloxy, Crotonyloxy, Propargyloxy;
- Trifluormethyl, Trifluorethyl,
- Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Difluorchlormethoxy, Trifluorethoxy, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Difluorchlormethylthio, Trifluormethylsulfinyl oder Trifluormethylsulfonyl,
- Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, Dimethylamino, Diethylamino,
- Acetyl, Propionyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, Dimethylaminocarbonyl, Diethylaminocarbonyl, Dimethyl-

aminocarbonyloxy, Diethylaminocarbonyloxy, Benzylaminocarbonyl, Acryloyl, Propioloyl,

Cyclopentyl, Cyclohexyl,

- 5 jeweils gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Oxo, Methyl oder Trifluormethyl substituiertes, jeweils zweifach verknüpftes Propandiyl, Ethylenoxy, Methylendioxy, Ethylendioxy

oder eine Gruppierung , wobei

A¹ für Wasserstoff, Methyl oder Hydroxy steht und

- 10 A² für Hydroxy, Methoxy, Ethoxy, Amino, Methylamino, Phenyl, Benzyl oder Hydroxyethyl steht, sowie

15 sowie jeweils gegebenenfalls im Ringteil einfach bis dreifach durch Halogen, und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Phenyl, Phenoxy, Phenylthio, Benzoyl, Benzoyl-ethenyl, Cinnamoyl, Benzyl, Phenylethyl, Phenylpropyl, Benzyloxy, Benzylthio, 5,6-Dihydro-1,4,2-dioxazin-3-ylmethyl, Triazolylmethyl, Benzoxazol-2-yl-methyl, 1,3-Dioxan-2-yl, Benzimidazol-2-yl, Dioxol-2-yl, Oxadiazolyl,

E für -CH= oder Stickstoff steht,

Q für Sauerstoff, Schwefel, eine Einfachbindung oder für ein gegebenenfalls durch Methyl substituiertes Stickstoffatom steht und

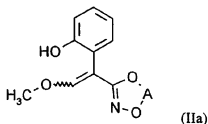
- 20 X für Fluor oder Chlor steht.

Die oben aufgeführten allgemeinen oder in Vorzugsbereichen angegebenen Reste-
definitionen gelten sowohl für die Endprodukte der Formel (I) als auch entsprechend
für die jeweils zur Herstellung benötigten Ausgangsstoffe bzw. Zwischenprodukte

Die in den jeweiligen Kombinationen bzw. bevorzugten Kombinationen von Resten im einzelnen für diese Reste angegebenen Restdefinitionen werden unabhängig von der jeweilig angegebenen Kombination, beliebig auch durch Restdefinitionen anderer Vorzugsbereiche ersetzt.

- 5 Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens a) als Ausgangsstoffe benötigten Hydroxyverbindungen sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In dieser Formel (II) haben A und E vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt bzw. als insbesondere bevorzugt für A
10 und E angegeben wurden.

Die Ausgangsstoffe der Formel (II) sind teilweise bekannt und/oder können nach an sich bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. WO-A 9504728). Neu, und auch Gegenstand der vorliegenden Anmeldung, sind Methoxyvinylverbindungen der allgemeinen Formel (IIa),

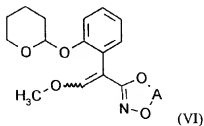


15

in welcher

A die oben angegebene Bedeutung hat.

Die Methoxyvinylverbindungen der Formel (IIa) werden erhalten, wenn man (Verfahren a-1) Tetrahydropyranylether der allgemeinen Formel (VI),



20

in welcher

A die oben angegebene Bedeutung hat,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, vorzugsweise eines Ethers, wie Diethylether, Diisopropylether, Methyl-t-butylether, Methyl-t-Amylether, Dioxan, 5 Tetrahydrofuran, 1,2-Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan oder Anisol; eines Sulfoxides, wie Dimethylsulfoxid; eines Sulfons, wie Sulfolan; eines Alkohols, wie Methanol, Ethanol, n- oder i-Propanol, n-, i-, sek- oder tert-Butanol, Ethandiol, Propan-1,2-diol, Ethoxyethanol, Methoxyethanol, Diethylenglykolmonomethylether, Diethylenglykolmonoethylether, deren Gemischen mit Wasser oder reinem Wasser

10 mit einer Säure, vorzugsweise einer anorganischen oder organischen Protonen- oder Lewissäure, wie beispielsweise Chlorwasserstoff, Schwefelsäure, Phosphorsäure, Ameisensäure, Essigsäure, Trifluoressigsäure, Methansulfonsäure, Trifluormethansulfonsäure, Toluolsulfonsäure, Bortrifluorid (auch als Etherat), Bortribromid, Aluminiumtrichlorid, Zinkchlorid, Eisen-III-chlorid, Antimonpentachlorid, oder auch einer 15 polymeren Säure wie beispielsweise einem sauren Ionenaustauscher, einer sauren Tonerde oder saurem Kieselgel,

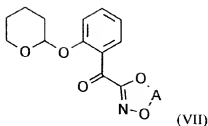
bei Temperaturen von -20°C bis 120°C, vorzugsweise bei Temperaturen von -10°C bis 80°C,

behandelt.

20 Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens a-1) als Ausgangsstoffe benötigten Tetrahydropyranylether sind durch die Formel (VI) allgemein definiert. In dieser Formel (VI) hat A vorzugsweise bzw. insbesondere diejenige Bedeutung, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt bzw. als insbesondere bevorzugt für A angegeben 25 wurde.

Die Ausgangsstoffe der Formel (VI) sind neu und auch Gegenstand der vorliegenden Anmeldung.

Die Tetrahydropyranylether der Formel (VI) werden erhalten, wenn man (Verfahren a-2) Ketoverbindungen der allgemeinen Formel (VII),



in welcher

A die oben angegebene Bedeutung hat,

5 mit Methoxymethyl-triphenyl-phosphonium-chlorid, -bromid oder -iodid, gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, vorzugsweise eines inerten, aprotischen Lösungsmittels, wie beispielsweise eines Ethers, wie Diethylether, Diisopropylether, Methyl-t-butylether, Methyl-t-Amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2-Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan oder Anisol; eines Amids, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder
 10 Hexamethylphosphorsäuretriamid; eines Sulfoxids, wie Dimethylsulfoxid, oder eines Sulfons, wie Sulfolan, und

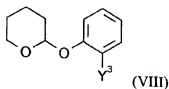
gegebenenfalls in Gegenwart einer Base, vorzugsweise eines Erdalkalimetall- oder Alkalimetallhydrids, -hydroxids, -amids oder -alkoholates, wie beispielsweise Natriumhydrid, Natriumamid, Natrium-methylat, Natrium-ethylat, Kalium-tert.-butylat,
 15 Natriumhydroxid oder Kaliumhydroxid,

bei Temperaturen von 0°C bis 100°C, vorzugsweise von 20°C bis 80°C, umgesetzt.

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens a-2) als Ausgangsstoffe benötigten Ketoverbindungen sind durch die Formel (VII) allgemein definiert. In dieser
 20 Formel (VII) hat A vorzugsweise bzw. insbesondere diejenige Bedeutung, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt bzw. als insbesondere bevorzugt für A angegeben wurde.

Die Ausgangsstoffe der Formel (VII) sind neu und auch Gegenstand der vorliegenden Anmeldung.

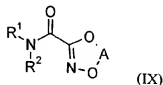
Die Ketoverbindungen der Formel (VII) werden erhalten, wenn man (Verfahren a-3) Halogenphenylverbindungen der allgemeinen Formel (VIII),



in welcher

5 Y³ für Halogen steht,

mit Amiden der Formel (IX),



in welcher

A die oben angegebene Bedeutung hat und

10 R¹ und R² gleich oder verschieden sind und für Alkyl stehen, oder gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, für einen 3 bis 8-gliedrigen, gesättigten, heterocyclischen Ring stehen,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, vorzugsweise eines aliphatischen, alicyclischen oder aromatischen Kohlenwasserstoffes, wie beispielsweise Petrolether, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Methylcyclohexan, Benzol, Toluol, Xylol oder Decalin, oder eines Ethers, wie Diethylether, Diisopropylether, Methyl-t-butylether, Methyl-t-Amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2-Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan oder Anisol und

20 gegebenenfalls in Gegenwart einer Base, vorzugsweise eines Erdalkalimetall- oder Alkalimetallhydrids, -amids, wie beispielsweise Natriumhydrid oder Natriumamid, oder einer Alkali- oder Erdalkalimetall-Kohlenwasserstoffverbindung, wie Butyllithium,

bei Temperaturen von -80 bis 20°C, vorzugsweise -60 bis -20°C, umsetzt.

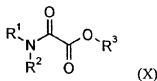
Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens a-3) als Ausgangsstoffe benötigten Halogenphenylverbindungen sind durch die Formel (VIII) allgemein definiert. In dieser Formel (VIII) steht Y³ für Halogen, bevorzugt für Brom.

- 5 Die Ausgangsstoffe der Formel (VIII) sind bekannt und/oder können nach bekannten Methoden hergestellt werden (vergleiche z. B. Synthesis 1987, 951).

- Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens a-3) weiterhin als Ausgangsstoffe benötigten Amide sind durch die Formel (IX) allgemein definiert. In dieser Formel (IX) hat A vorzugsweise bzw. insbesondere diejenige Bedeutung, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt bzw. als insbesondere bevorzugt für A angegeben wurde. R¹ und R² sind gleich oder verschieden und stehen für Alkyl, vorzugsweise für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl oder n-, i-, s- oder t-Butyl, oder stehen gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, für einen 3 bis 8-gliedrigen, gesättigten, heterocyclischen Ring, vorzugsweise für Azetidiny, Pyrrolidiny, Morpholiny, Piperidiny, Hexahydroazepiny.

Die Ausgangsstoffe der Formel (IX) sind neu und auch Gegenstand der vorliegenden Anmeldung.

- Die Amide der Formel (IX) werden erhalten, wenn man (Verfahren a-4) Oxalsäureesteramide der allgemeinen Formel (X),



in welcher

R¹ und R² die oben angegebenen Bedeutungen haben und

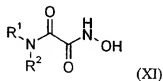
R³ für Alkyl steht,

zunächst mit Hydroxylamin oder einem seiner Säureadditionssalze, gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, vorzugsweise eines Alkohols, wie Methanol, Ethanol, n- oder i-Propanol, n-, i-, sek- oder tert-Butanol, Ethandiol, Propan-1,2-diol, Ethoxyethanol, Methoxyethanol, Diethylenglykolmonomethylether, Diethylenglykolmonoethylether,

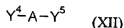
und gegebenenfalls in Gegenwart einer Base, vorzugsweise eines Erdalkalimetallhydroxids, -alkoholates, -acetates, -carbonates oder -hydrogencarbonates, wie beispielsweise Natriumamid, Natrium-methylat, Natrium-ethylat, Kalium-tert.-butylat, Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, Natriumacetat, Kaliumacetat, Calciumacetat, Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumhydrogencarbonat oder Natriumhydrogencarbonat,

bei Temperaturen von -20 bis 50°C, vorzugsweise 0 bis 40°C, umsetzt,

und die so erhaltene Hydroxamsäure der Formel (XI)



ohne Aufarbeitung mit einem Alkylenderivat der allgemeinen Formel (XII),



in welcher

A die oben angegebene Bedeutung hat und

Y⁴ und Y⁵ gleich oder verschieden sind und für Halogen, Alkylsulfonyl oder Arylsulfonyl stehen,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, vorzugsweise eines Alkoholes und gegebenenfalls in Gegenwart einer Base, vorzugsweise eines Erdalkali-

metall-hydroxids, -alkoholates, -acetates, -carbonates oder -hydrogencarbonates, wie beispielsweise Natriumamid, Natrium-methylat, Natrium-ethylat, Kalium-tert.-butylat, Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, Natriumacetat, Kaliumacetat, Calciumacetat, Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumhydrogencarbonat oder Natriumhydrogencarbonat, umsetzt.

Die zur Durchführung der ersten Stufe des erfindungsgemäßen Verfahrens a-4) als Ausgangsstoffe benötigten Oxalsäureesteramide sind durch die Formel (X) allgemein definiert. In dieser Formel (X) haben R^1 und R^2 vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (IX) als bevorzugt bzw. als insbesondere bevorzugt für R^1 und R^2 angegeben wurden. R^3 steht für Alkyl, vorzugsweise für Methyl oder Ethyl.

Die Ausgangsstoffe der Formel (X) sind bekannt und/oder können nach bekannten Methoden hergestellt werden (vergleiche z. B. EP-A 469889).

Das weiterhin zur Durchführung der ersten Stufe des erfindungsgemäßen Verfahrens a-4) benötigte Hydroxylamin oder dessen Salze sind allgemein übliche Syntheschemikalien.

Die zur Durchführung der zweiten Stufe des erfindungsgemäßen Verfahrens a-4) als Ausgangsstoffe benötigten Alkylenderivate sind durch die Formel (XII) allgemein definiert. In dieser Formel (XII) hat A vorzugsweise bzw. insbesondere diejenige Bedeutung, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt bzw. als insbesondere bevorzugt für A angegeben wurde. Y^4 und Y^5 sind gleich oder verschieden und stehen für Halogen, vorzugsweise für Chlor oder Brom; Alkylsulfonyl, vorzugsweise Methansulfonyl; oder Arylsulfonyl, vorzugsweise Toluolsulfonyl.

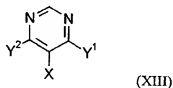
Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens a) weiterhin als Ausgangsstoffe benötigten Halogenpyrimidine sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In dieser Formel (III) haben R, Q und X vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt bzw. als insbesondere bevorzugt für R, Q und X angegeben wurden. Y^1 steht für Halogen, bevorzugt für Fluor oder Chlor.

Die Ausgangsstoffe der Formel (III) sind bekannt und/oder können nach bekannten Methoden hergestellt werden (vergleiche z. B. DE-A 4340181; Chem.Ber., 90 <1957> 942, 951).

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens b) als Ausgangsstoffe benötigten Phenoxypyrimidine sind durch die Formel (IV) allgemein definiert. In dieser Formel (IV) haben A, E und X vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt bzw. als insbesondere bevorzugt für A, E und X angegeben wurden. Y² steht für Halogen, vorzugsweise für Fluor oder Chlor.

Die Ausgangsstoffe der Formel (IV) sind neu und ebenfalls Gegenstand der vorliegenden Anmeldung.

Die Phenoxypyrimidine der allgemeinen Formel (IV) werden erhalten (Verfahren b-1), wenn man Hydroxyverbindungen der allgemeinen Formel (II) mit einem Trihalogenpyrimidin der allgemeinen Formel (XIII)



in welcher

X, Y¹ und Y² gleich oder verschieden sind und jeweils für Halogen stehen,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, umgesetzt.

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens b-1) als Ausgangsstoffe benötigten Hydroxyverbindungen der Formel (II) sind bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung des erfindungsgemäßen Verfahrens a) beschrieben worden.

Die weiterhin zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens b-1) als Ausgangsstoffe benötigten Trihalogenpyrimidine sind durch die Formel (XIII) allgemein

definiert. In dieser Formel (XIII) stehen X, Y¹ und Y² für Halogen, vorzugsweise für Fluor oder Chlor.

Die Trihalogenpyrimidine sind bekannt und/oder können nach bekannten Methoden hergestellt werden (vergleiche z. B. Chesterfield et al., J. Chem. Soc., 1955, 3478, 3480).

Die weiterhin zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens b) als Ausgangsstoffe benötigten Ringverbindungen sind durch die Formel (V) allgemein definiert. In dieser Formel (V) haben R und Q vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt bzw. als insbesondere bevorzugt für R und Q angegeben wurden.

Die Ringverbindungen der Formel (V) sind bekannte Syntheschemikalien oder können nach einfachen Methoden hergestellt werden.

Als Verdünnungsmittel zur Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren a), b) und b-1) kommen alle inerten organischen Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Methyl-t-butylether, Methyl-t-Amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2-Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan oder Anisol; Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril, n- oder i-Butyronitril oder Benzonitril; Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; Sulfoxide, wie Dimethylsulfoxid; oder Sulfone, wie Sulfolan.

Die erfindungsgemäßen Verfahren a), b) und b-1) werden gegebenenfalls in Gegenwart eines geeigneten Säureakzeptors durchgeführt. Als solche kommen alle üblichen anorganischen oder organischen Basen infrage. Hierzu gehören vorzugsweise Erdalkalimetall- oder Alkalimetallhydride, -hydroxide, -alkoholate, -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Natriumhydrid, Natriumamid, Kalium-tert-butylat, Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumhydrogencarbonat oder Natriumhydrogencarbonat.

Als Katalysatoren für die erfindungsgemäßen Verfahren a), b) und b-1) eignen sich alle Kupfer(I)-Salze, wie beispielsweise Kupfer(I)-chlorid, Kupfer(I)-bromid oder Kupfer(I)-iodid.

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren a), b) und b-1) in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen von -20°C bis 100°C, vorzugsweise bei Temperaturen von -10°C bis 80°C.

- 5 Alle erfindungsgemäßen Verfahren werden im allgemeinen unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, unter erhöhtem oder vermindertem Druck - im allgemeinen zwischen 0,1 bar und 10 bar - zu arbeiten.

Die Reaktionsdurchführung, Aufarbeitung und Isolierung der Reaktionsprodukte erfolgt nach allgemein üblichen Verfahren (vergleiche auch die Herstellungsbeispiele).

- 10 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe weisen eine starke mikrobizide Wirkung auf und können zur Bekämpfung von unerwünschten Mikroorganismen praktisch eingesetzt werden. Die Wirkstoffe sind für den Gebrauch als Pflanzenschutzmittel, insbesondere als Fungizide geeignet.

- 15 Fungizide Mittel im Pflanzenschutz werden eingesetzt zur Bekämpfung von Plasmodiophoromycetes, Oomycetes, Chytridiomycetes, Zygomycetes, Ascomycetes, Basidiomycetes, Deuteromycetes.

Bakterizide Mittel werden im Pflanzenschutz zur Bekämpfung von Pseudomonadaceae, Rhizobiaceae, Enterobacteriaceae, Corynebacteriaceae und Streptomycetaceae eingesetzt.

- 20 Beispielhaft aber nicht begrenzend seien einige Erreger von pilzlichen und bakteriellen Erkrankungen, die unter die oben aufgezählten Oberbegriffe fallen, genannt:

Xanthomonas-Arten, wie beispielsweise *Xanthomonas campestris* pv. *oryzae*;
Pseudomonas-Arten, wie beispielsweise *Pseudomonas syringae* pv. *lachrymans*;
Erwinia-Arten, wie beispielsweise *Erwinia amylovora*;
25 Pythium-Arten, wie beispielsweise *Pythium ultimum*;
Phytophthora-Arten, wie beispielsweise *Phytophthora infestans*;
Pseudoperonospora-Arten, wie beispielsweise *Pseudoperonospora humuli* oder *Pseudoperonospora cubensis*;
Plasmopara-Arten, wie beispielsweise *Plasmopara viticola*;
30 Bremia-Arten, wie beispielsweise *Bremia lactucae*;
Peronospora-Arten, wie beispielsweise *Peronospora pisi* oder *P. brassicae*;

- Erysiphe-Arten, wie beispielsweise *Erysiphe graminis*;
 Sphaerotheca-Arten, wie beispielsweise *Sphaerotheca fuliginea*;
 Podosphaera-Arten, wie beispielsweise *Podosphaera leucotricha*;
 Venturia-Arten, wie beispielsweise *Venturia inaequalis*;
 5 Pyrenophora-Arten, wie beispielsweise *Pyrenophora teres* oder *P. graminea*
 (Konidienform: *Drechslera*, Syn: *Helminthosporium*);
Cochliobolus-Arten, wie beispielsweise *Cochliobolus sativus*
 (Konidienform: *Drechslera*, Syn: *Helminthosporium*);
Uromyces-Arten, wie beispielsweise *Uromyces appendiculatus*;
 10 *Puccinia*-Arten, wie beispielsweise *Puccinia recondita*;
Sclerotinia-Arten, wie beispielsweise *Sclerotinia sclerotiorum*;
Tilletia-Arten, wie beispielsweise *Tilletia caries*;
Ustilago-Arten, wie beispielsweise *Ustilago nuda* oder *Ustilago avenae*;
Pellicularia-Arten, wie beispielsweise *Pellicularia sasakii*;
 15 *Pyricularia*-Arten, wie beispielsweise *Pyricularia oryzae*;
Fusarium-Arten, wie beispielsweise *Fusarium culmorum*;
Botrytis-Arten, wie beispielsweise *Botrytis cinerea*;
Septoria-Arten, wie beispielsweise *Septoria nodorum*;
Leptosphaeria-Arten, wie beispielsweise *Leptosphaeria nodorum*;
 20 *Cercospora*-Arten, wie beispielsweise *Cercospora canescens*;
Alternaria-Arten, wie beispielsweise *Alternaria brassicae*;
Pseudocercospora-Arten, wie beispielsweise *Pseudocercospora herpotrichoides*.

- Die gute Pflanzenverträglichkeit der Wirkstoffe in den zur Bekämpfung von Pflanzenkrankheiten notwendigen Konzentrationen erlaubt eine Behandlung von oberirdischen
 25 Pflanzenteilen, von Pflanz- und Saatgut, und des Bodens.

- Dabei werden die erfindungsgemäßen Wirkstoffe mit besonders gutem Erfolg zur Bekämpfung von Getreidekrankheiten, wie beispielsweise gegen Erysiphe-, Fusarium-,
Pseudocercospora- und *Puccinia*-Arten oder von Krankheiten im Wein-, Obst- und
 30 Gemüseanbau, wie beispielsweise gegen Venturia-, Sphaerotheca-, Phytophthora- und
Plasmopara-Arten, oder auch von Reiskrankheiten, wie beispielsweise *Pyricularia*-
 Arten, eingesetzt. Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe weisen ferner eine sehr starke
 und breite in vitro-Wirkung auf.

Die Wirkstoffe können in Abhängigkeit von ihren jeweiligen physikalischen und/oder chemischen Eigenschaften in die üblichen Formulierungen überführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Suspensionen, Pulver, Schäume, Pasten, Granulate, Aerosole, Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen und in Hüllmassen für Saatgut, sowie ULV-Kalt- und Warmnebel-Formulierungen.

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln, unter Druck stehenden verflüssigten Gasen und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaumerzeugenden Mitteln. Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie Xylol, Toluol oder Alkyl-naphthaline, chlorierte Aromaten oder chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, Alkohole, wie Butanol oder Glycol sowie deren Ether und Ester, Ketone, wie Aceton, Methyläthylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser. Mit verflüssigten gasförmigen Streckmitteln oder Trägerstoffen sind solche Flüssigkeiten gemeint, welche bei normaler Temperatur und unter Normaldruck gasförmig sind, z.B. Aerosol-Treibgase, wie Halogenkohlenwasserstoffe sowie Butan, Propan, Stickstoff und Kohlendioxid. Als feste Trägerstoffe kommen in Frage: z.B. natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate. Als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnußschalen, Maiskolben und Tabakstengel. Als Emulgier und/oder schaumerzeugende Mittel kommen in Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyäthylen-Fettsäureester, Polyoxyäthylen-Fettalkoholether, z.B. Alkylarylpolyglycol-ether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate. Als Dispergiermittel kommen in Frage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulverige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden,

wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kephaleine und Lecithine, und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

- 5 Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe, wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

- 10 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Fungiziden, Bakteriziden, Akariziden, Nematiziden oder Insektiziden verwendet werden, um so z.B. das Wirkungsspektrum zu verbreitern oder Resistenzentwicklungen vorzubeugen. In vielen Fällen erhält man dabei synergistische Effekte, d.h. die Wirksamkeit der Mischung ist größer als die
- 15 Wirksamkeit der Einzelkomponenten.

Als Mischpartner kommen zum Beispiel folgende Verbindungen in Frage:

Fungizide:

- 2-Aminobutan; 2-Anilino-4-methyl-6-cyclopropyl-pyrimidin; 2',6'-Dibromo-2-methyl-4'-trifluoromethoxy-4'-trifluoro-methyl-1,3-thiazole-5-carboxanilid; 2,6-Dichloro-N-(4-trifluoromethylbenzyl)-benzamid; (E)-2-Methoxyimino-N-methyl-2-(2-phenoxyphenyl)-acetamid; 8-Hydroxychinolinsulfat; Methyl-(E)-2-{2-[6-(2-cyanophenoxy)pyrimidin-4-yloxy]-phenyl}-3-methoxyacrylat; Methyl-(E)-methoximino[alpha-(o-tolyloxy)-o-lyl]-acetat; 2-Phenylphenol (OPP), Aldimorph, Ampropylfos, Anilazin, Azaconazol,
- 20 Benalaxyl, Benodanil, Benomyl, Binapacryl, Biphenyl, Bitertanol, Blasticidin-S, Bromuconazole, Bupirimate, Buthiobate, Calciumpolysulfid, Captafol, Captan, Carbendazim, Carboxin, Chinomethionat (Quinomethionat), Chloroneb, Chloropicrin, Chlorothalonil, Chlozolinat, Cufraneb, Cymoxanil, Cyproconazole, Cyprofuram,
- 25 Dichlorophen, Diclobutrazol, Diclofluanid, Diclomezin, Dicloran, Diethofencarb, Difenoconazol, Dimethirimol, Dimethomorph, Diniconazol, Dinocap, Diphenylamin, Dipyrrithion, Ditalimfos, Dithianon, Dodine, Drazoxolon, Edifenphos, Epoxyconazole, Ethirimol, Etridiazol,
- 30

- Fenarimol, Fenbuconazole, Fenfuram, Fenitropan, Fenciclonil, Fenpropidin, Fenpropimorph, Fentinacetat, Fentinhydroxyd, Ferbam, Ferimzone, Fluazinam, Fludioxonil, Fluoromide, Fluquinconazole, Flusilazole, Flusulfamide, Flutolanil, Flutriafol, Folpet, Fosetyl-Aluminium, Fthalide, Fuberidazol, Furalaxyl, Furmecyclox,
 5 Guazatine,
 Hexachlorobenzol, Hexaconazol, Hymexazol,
 Imazalil, Imibenconazol, Iminoctadin, Iprobenfos (IBP), Iprodion, Isoprothiolan, Kasugamycin, Kupfer-Zubereitungen, wie: Kupferhydroxid, Kupfernaphthenat, Kupferoxychlorid, Kupfersulfat, Kupferoxid, Oxin-Kupfer und Bordeaux-Mischung,
 10 Mancopper, Mancozeb, Maneb, Mepanipyrim, Mepronil, Metalaxyl, Metconazol, Methasulfocarb, Methfuroxam, Metiram, Metsulfovax, Myclobutanil, Nickel-dimethyldithiocarbamat, Nitrothal-isopropyl, Nuarimol, Ofurace, Oxadixyl, Oxamocarb, Oxycarboxin, Pefurazoat, Penconazol, Pencycuron, Phosdiphen, Pimaricin, Piperalin, Polyoxin, Probenazol, Prochloraz, Procymidon, Propamocarb, Propiconazole, Propineb, Pyrazophos, Pyrifenoxy, Pyrimethanil, Pyroquilon,
 15 Quintozen (PCNB), Schwefel und Schwefel-Zubereitungen, Tebuconazol, Tecloftalam, Tecnazen, Tetraconazol, Thiabendazol, Thicyofen, Thiophanat-methyl, Thiram, Tolclophos-methyl, Tolyfluamid, Triadimefon, Triadimenol, Triazoxid, Trichlamid, Tricyclazol, Tridemorph, Triflumizol, Triforin, Triticonazol, Validamycin A, Vinclozolin,
 20 Zineb, Ziram

Bakterizide:

- 25 Bronopol, Dichlorophen, Nitrapyrin, Nickel-dimethyldithiocarbamat, Kasugamycin, Othilolin, Furancarbonsäure, Oxytetracyclin, Probenazol, Streptomycin, Tecloftalam, Kupfersulfat und andere Kupfer-Zubereitungen.

Insektizide / Akarizide / Nematizide:

- 30 Abamectin, Acephat, Acrinathrin, Alanycarb, Aldicarb, Alphamethrin, Amitraz, Avermectin, AZ 60541, Azadirachtin, Azinphos A, Azinphos M, Azocyclotin, Bacillus thuringiensis, 4-Bromo-2-(4-chlorphenyl)-1-(ethoxymethyl)-5-(trifluoromethyl)-1H-pyrrole-3-carbonitril, Bendiocarb, Benfuracarb, Bensultap, Betacyfluthrin, Bifenthrin, BPMC, Brofenprox, Bromophos A, Bufencarb, Buprofezin, Butocboxin, Butylpyridaben,

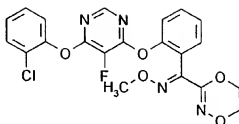
- Cadusafos, Carbaryl, Carbofuran, Carbophenothion, Carbosulfan, Cartap, Chloetho-
 carb, Chlorethoxyfos, Chlorfenvinphos, Chlorfluazuron, Chlormephos, N-[(6-Chloro-
 3-pyridinyl)-methyl]-N'-cyano-N-methyl-ethanimidamide, Chlorpyrifos, Chlorpyrifos
 5 M, Cis-Resmethrin, Clocythrin, Clofentezin, Cyanophos, Cycloprothrin, Cyfluthrin,
 Cyhalothrin, Cyhexatin, Cypermethrin, Cyromazin,
 Deltamethrin, Demeton M, Demeton S, Demeton-S-methyl, Diafenthion, Diazinon,
 Dichlofenthion, Dichlorvos, Dicliphos, Dicrotophos, Diethion, Diflubenzuron, Dime-
 thoat,
 Dimethylvinphos, Dioxathion, Disulfoton,
 10 Edifenphos, Emamectin, Esfenvalerat, Ethiofencarb, Ethion, Ethofenprox, Ethopro-
 phos, Etrimpfos,
 Fenamiphos, Fenazaquin, Fenbutatinoxid, Fenitrothion, Fenobucarb, Fenothiocab,
 Fenoxycarb, Fenpropathrin, Fenpyrad, Fenpyroximat, Fenthion, Fenvalerate, Fipronil,
 Fluazinam, Fluazuron, Flucycloxuron, Flucythrinat, Flufenoxuron, Flufenprox,
 15 Flusalinate, Fonophos, Formothion, Fosthiazat, Fufenprox, Furathiocab,
 HCH, Heptenophos, Hexaflumuron, Hexythiazox,
 Imidacloprid, Iprobenfos, Isazophos, Isofenphos, Isoprocarb, Isoxathion, Ivermectin,
 Lambda-cyhalothrin, Lufenuron,
 Malathion, Mecarbam, Mevinphos, Mesulfenphos, Metaldehyd, Methacrifos, Metha-
 midophos, Methidathion, Methiocab, Methomyl, Metolcarb, Milbemectin, Mono-
 20 crotophos, Moxidectin,
 Naled, NC 184, Nitenpyram
 Omethoat, Oxamyl, Oxydemethon M, Oxydeprofos,
 Parathion A, Parathion M, Permethrin, Phenthoat, Phorat, Phosalon, Phosmet, Phos-
 phamidon, Phoxim, Pirimicarb, Pirimiphos M, Pirimiphos A, Profenophos,
 25 Promecarb, Propaphos, Propoxur, Prothiophos, Prothoat, Pymetrozin, Pyrachlophos,
 Pyridaphenthion, Pyresmethrin, Pyrethrum, Pyridaben, Pyrimidifen, Pyriproxifen,
 Quinalphos,
 Salithion, Sebufos, Silafluofen, Sulfotep, Sulprofos,
 30 Tebufenozone, Tebufenpyrad, Tebupirimphos, Teflubenzuron, Tefluthrin, Temephos,
 Terbam, Terbufos, Tetrachlorvinphos, Thiafenox, Thiodicarb, Thiofanox, Thio-
 methon, Thionazin, Thuringiensin, Tralomethrin, Triarathen, Triazophos, Triazuron, Tri-
 chlorfon, Triflumuron, Trimethacarb,
 Vamidothion, XMC, Xyllycarb, Zetamethrin.
 35 Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Herbiziden oder mit
 Düngemitteln und Wachstumsregulatoren ist möglich.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche, in Form ihren handelsüblichen Formulierungen oder den daraus bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Spritzpulver, Pasten, lösliche Pulver, Stäubemittel und Granulate angewendet werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Verspritzen, Versprühen, Verstreuen, Verschäumen, Bestreichen usw.. Es ist ferner möglich die Wirkstoffe nach dem Ultra-Low-Volume-Verfahren auszubringen oder die Wirkstoffzubereitung oder der Wirkstoff selbst in den Boden zu injizieren. Es kann auch das Saatgut der Pflanzen behandelt werden.

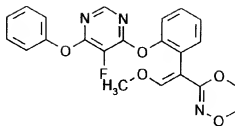
Bei der Behandlung von Pflanzenteilen können die Wirkstoffkonzentrationen in den Anwendungsformen in einem größeren Bereich variiert werden: Sie liegen im allgemeinen zwischen 1 und 0,0001 Gew.-%, vorzugsweise zwischen 0,5 und 0,001 Gew.-%.

Bei der Saatgutbehandlung werden im allgemeinen Wirkstoffmengen von 0,001 bis 50 g je Kilogramm Saatgut, vorzugsweise 0,01 bis 10 g benötigt.

Bei der Behandlung des Bodens sind Wirkstoffkonzentrationen von 0,00001 bis 0,1 Gew.-%, vorzugsweise von 0,0001 bis 0,02 Gew.-% am Wirkungsort erforderlich.

Herstellungsbeispiele:**Beispiel 1**5 **Verfahren a)**

Zu einer Mischung aus 135,3 g (0,56 Mol) 3-[1-(2-Hydroxyphenyl)-1-(meth-
 oximino)-methyl]-5,6-dihydro-1,4,2-dioxazin und 197,6 g gemahlenem Kalium-
 carbonat in 460 ml Acetonitril gibt man bei 20°C auf einmal 136,8 g (0,56 Mol) 4-(2-
 Chlorphenoxy)-5,6-difluorpyrimidin, wobei die Temperatur auf 31°C steigt. Es wird
 10 noch 6 Stunden bei 50°C und dann ohne weitere Wärmezufuhr über Nacht gerührt,
 wobei sich die Mischung abkühlt. Das Reaktionsgemisch wird zu 2,3 l Eiswasser
 gegeben und 5 Stunden gerührt, wobei das Produkt auskristallisiert. Dieses wird
 abgesaugt und mit 0,57 l Wasser portionsweise nachgewaschen. Man erhält 260 g
 (97,8% der Theorie) 3-[1-[2-(4-<2-Chlorphenoxy>-5-fluorpyrimid-6-yloxy)-phenyl]-
 15 1-(methoximino)-methyl]-5,6-dihydro-1,4,2-dioxazin vom Schmelzpunkt 75°C

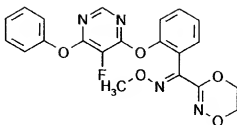
Beispiel 2

Verfahren a)

5 Zu einer Lösung von 0,7 g (0,00298 Mol) 3-[1-(2-Hydroxyphenyl)-2-methoxyethen-1-yl]-5,6-dihydro-1,4,2-dioxazin und 0,6 g (0,00288 Mol) 4-Phenoxy-5,6-difluorpyrimidin in 10 ml Dimethylformamid gibt man bei 0°C 0,119 g Natriumhydrid (60%ige Suspension in Mineralöl) zu und rührt hierauf 12 Stunden bei 20°C. Man gießt das Reaktionsgemisch auf Wasser und extrahiert mit Essigsäureethylester. Die vereinigten organischen Phasen werden über Natriumsulfat getrocknet und bei 10 vermindertem Druck eingeeengt. Der Rückstand wird mit Cyclohexan/Essigester (1:1) an Kieselgel chromatografiert. Man erhält 0,4 g (82 % der Theorie) 3-[1-[2-(4-Phenoxy-5-fluorpyrimidin-6-yloxy)-phenyl]-2-methoxyethen-1-yl]-5,6-dihydro-1,4,2-dioxazin.

15 ¹H-NMR-Spektrum (CDCl₃/TMS): δ = 3,678 (3H); 4,056/4,069/4,083 (2H); 4,300/4,314/4,328 (2H); 6,891 (1H); 7,199 - 7,475 (9H); 8,063 (1H) ppm.

Beispiel 3



Verfahren b)

- 5 Eine Mischung aus 124,1 g (0.333 Mol) 3-{1-[2-(4,5-Difluorpyrimidin-6-yloxy)-phenyl]-1-(methoximino)-methyl}-5,6-dihydro-1,4,2-dioxazin, 31,3 g (0.333 Mol) Phenol, 46 g (0.333 Mol) Kaliumcarbonat, sowie 3,3 g Kupfer-(I)-chlorid in 1 l Dimethylformamid wird über Nacht bei 100°C gerührt. Nach Abkühlen auf 20°C wird das Lösungsmittel bei vermindertem Druck abdestilliert. Der Rückstand wird mit Essigsäureethylester aufgenommen und mehrmals mit Wasser gewaschen. Die
- 10 organische Phase wird über Natriumsulfat getrocknet und wiederum bei vermindertem Druck eingeeengt. Der Rückstand wird mit Hexan/Aceton (7:3) an Kieselgel chromatografiert. Man erhält 112,4 g (97% der Theorie) 3-{1-[2-(4-Phenoxy-5-fluorpyrimidin-6-yloxy)-phenyl]-1-(methoximino)-methyl}-5,6-dihydro-1,4,2-dioxazin vom Schmelzpunkt 110°C.
- 15 Analog den Beispielen 1 bis 3, sowie entsprechend den Angaben in der allgemeinen Verfahrensbeschreibung, werden die in der nachstehenden Tabelle 1 genannten Verbindungen der Formel (I) erhalten.

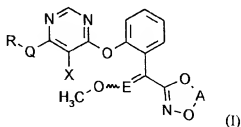


Tabelle 1:

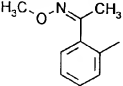
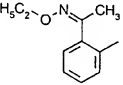


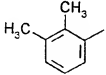

Bsp. -Nr.	R	Q	X	E	A	phys Daten
4		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
5		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
6		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	Fp.: 135°C
7		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.80 (s, 3H)
8		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
9		S	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.80 (s, 3H)

Tabelle I. Fortsetzung




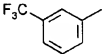
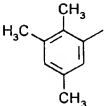

Bsp. -Nr.	R	Q	X	E	A	phys Daten
10		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
11		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
12		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
13		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
14		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
15		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.80 (s, 3H)

Tabelle 1: Fortsetzung





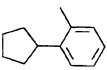


Bsp. -Nr.	R	Q	X	E	A	phys Daten
16		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.80 (s, 3H)
17		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
18		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.80 (s, 3H)
19		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.80 (s, 3H)
20		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
21		NH	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
22		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.80 (s, 3H)

Tabelle 1: Fortsetzung



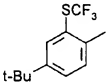

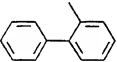
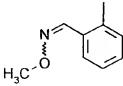
Bsp. -Nr.	R	Q	X	E	A	phys Daten
23		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
24		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
25		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
26		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
27		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.70 (s, 3H)
28		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)

Tabelle 1: Fortsetzung

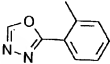
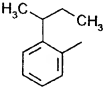
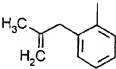

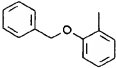

Bsp. -Nr.	R	Q	X	E	A	phys Daten
29		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
30		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.80 (s, 3H)
31		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
32		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.80 (s, 3H)
33		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.75 (s, 3H)
34		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)

Tabelle 1: Fortsetzung

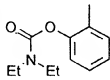
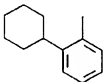

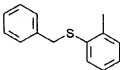
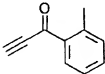
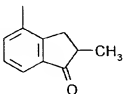
Bsp. -Nr.	R	Q	X	E	A	phys Daten
35		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.90 (s, 3H)
36		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.80 (s, 3H)
37		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.80 (s, 3H)
38		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.80 (s, 3H)
39		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
40		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)

Tabelle 1. Fortsetzung


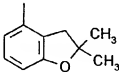
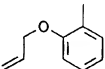
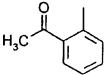
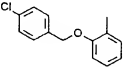


Bsp. -Nr.	R	Q	X	E	A	phys Daten
41		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
42		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.80 (s, 3H)
43		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
44		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
45		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.80 (s, 3H)
46		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
47		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)

Tabelle I: Fortsetzung








Bsp. -Nr.	R	Q	X	E	A	phys Daten
48		-CH ₂ -O-	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.80 (s, 3H)
49		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.80 (s, 3H)
50		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
51		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	Fp.: 168°C
52		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	Fp.: 192°C
53		-CH ₂ -O-	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
54		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)

Tabelle 1: Fortsetzung

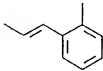
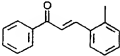
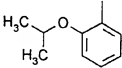
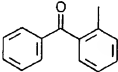
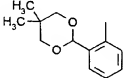
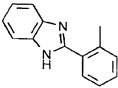
Bsp. -Nr.	R	Q	X	E	A	phys Daten
55		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
56		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
57		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
58		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.80 (s, 3H)
59		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.80 (s, 3H)
60		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.80 (s, 3H)

Tabelle 1: Fortsetzung

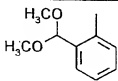
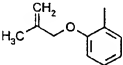
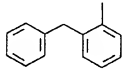
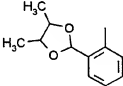
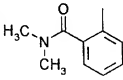
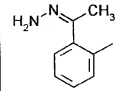
Bsp. -Nr.	R	Q	X	E	A	phys Daten
61		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
62		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
63		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.80 (s, 3H)
64		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
65		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
66		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.80 (s, 3H)

Tabelle 1: Fortsetzung

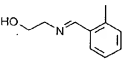
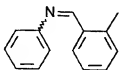
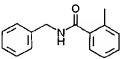
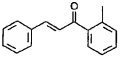
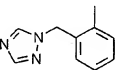
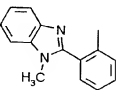
Bsp. -Nr.	R	Q	X	E	A	phys Daten
67		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
68		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
69		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.70 (s, 3H)
70		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.75 (s, 3H)
71		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
72		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.75 (s, 3H)

Tabelle 1. Fortsetzung

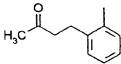
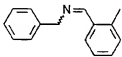

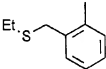


Bsp. -Nr.	R	Q	X	E	A	phys Daten
73		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
74		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
75		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
76		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
77		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
78		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)

Tabelle 1: Fortsetzung


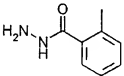
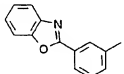
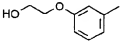
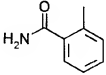
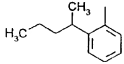
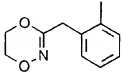
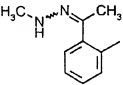




Bsp. -Nr.	R	Q	X	E	A	phys Daten
79		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
80		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
81		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.80 (s, 3H)
82		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.90 (s, 3H)
83		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	Fp: >200°C
84		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)

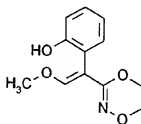
Tabelle 1: Fortsetzung

Bsp -Nr.	R	Q	X	E	A	phys Daten
85		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
86		O	F	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
87		O	Cl	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
88		O	Cl	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.90 (s, 3H)
89		O	Cl	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)
90		O	Cl	N	-CH ₂ -CH ₂ -	NMR*: 3.85 (s, 3H)

- *) Die ^1H -NMR-Spektren wurden in Deuteriochloroform (CDCl_3) oder Hexadeuteriodimethylsulfoxid ($\text{DMSO}-d_6$) mit Tetramethylsilan (TMS) als innerem Standard aufgenommen. Angegeben ist die chemische Verschiebung als δ -Wert in ppm.

Herstellung der Ausgangsverbindungen nach Formel (IIa):

Beispiel (IIa-1):



5

Verfahren a-1)

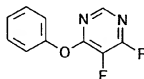
7,5 g (0,0235 Mol) 3-[1-[2-(Tetrahydropyran-2-yloxy)-phenyl]-2-methoxyethen-1-yl]-5,6-dihydro-1,4,2-dioxazin werden in 20 ml Methanol mit 0,15 g saurem Ionenaustauscherharz 16 Stunden bei 20°C gerührt. Das Ionenaustauscherharz wird abfiltriert und das Filtrat bei vermindertem Druck eingengt. Der Rückstand wird mit Cyclohexan/Essigester (1:1) an Kieselgel chromatografiert. Man erhält 1 g (18 % der Theorie) 3-[1-(2-Hydroxyphenyl)-2-methoxyethen-1-yl]-5,6-dihydro-1,4,2-dioxazin.

10

^1H -NMR-Spektrum (CDCl_3/TMS): δ = 3,794 (3H); 4,102-4,130 (2H); 4,383-4,411 (1H); 6,846 (1H); 6,885-6,994 (2H); 7,157-7,260 (2H) ppm.

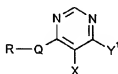
Herstellung von Ausgangsstoffen nach Formel (III)

Beispiel (III-1)





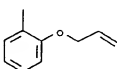




- 5 Eine Lösung von 42,4 g (0,45 Mol) Phenol und 50,4 g (0,45 Mol) Kalium-tert.-butylat in 400 ml Tetrahydrofuran tropft man bei 0°C zu einer Lösung von 80 g (0,6 Mol) 4,5,6-Trifluorpyrimidin in 1 l Tetrahydrofuran. Nach vollendeter Zugabe rührt man 30 Minuten bei 0°C, gießt dann das Reaktionsgemisch auf Wasser und extrahiert mit Essigsäureethylester. Man trocknet die organische Phase über Natriumsulfat, engt
- 10 im Vakuum ein und verrührt den Rückstand mit tiefsiedendem Petrolether. Man erhält 63,8 g (68,1 % der Theorie) 4-Phenoxy-5,6-difluorpyrimidin vom Schmelzpunkt 65 - 66°C.








Analog Beispiel (III-1) werden die Verbindungen der Formel





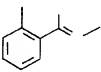



15

erhalten.

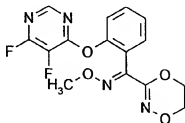
Bsp.	R	Q	X	Y ¹	Phys. Daten
III-2		O	F	F	Schmp. 91°C/0,6mbar Log P 3.20
III-3		O	F	F	Log P 3.74
III-4		O	F	F	Log P 3.32
III-5		O	F	F	Log P 3.66
III-6		O	F	F	
III-7		O	F	F	
III-8		O	F	F	

Bsp.	R	Q	X	Y ¹	Phys. Daten
III-9		O	F	F	
III-10		O	F	F	
III-11		O	F	F	
III-12		O	F	F	
III-13		O	F	F	
III-14		O	F	F	
III-15		O	F	F	

Bsp.	R	Q	X	Y ¹	Phys. Daten
III-16		O	F	F	
III-17		O	F	F	
III-18		O	F	F	
III-19		O	F	F	
III-20		O	F	F	
III-21		S	F	F	

Herstellung der Ausgangsstoffe nach Formel (IV):

Beispiel (IV-1):



Verfahren b-1)

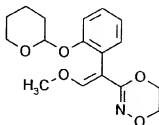
- 5 Zu einer Lösung von 47,2 g (0,2 Mol) 3-[1-(2-Hydroxyphenyl)-1-(methoximino)-methyl]-5,6-dihydro-1,4,2-dioxazin (WO-A 9504728) in 1 l Tetrahydrofuran werden bei 0°C zunächst 29,3 g (0,22 Mol) 4,5,6-Trifluorpyrimidin und anschließend 6,0 g (0,2 Mol) Natriumhydrid (80%ige Suspension in Mineralöl) in kleinen Portionen gegeben. Die Mischung wird 3 Stunden bei 0°C und anschließend über Nacht ohne weitere Kühlung gerührt. Der Rückstand wird mit Essigsäureethylester aufgenommen und mehrmals mit Wasser gewaschen. Die organische Phase wird über Natriumsulfat
- 10 getrocknet und wiederum bei vermindertem Druck eingeeengt, wobei ein zähes Öl zurückbleibt, das langsam kristallisiert. Man erhält 68,7 g (98% der Theorie) 3-{1-[2-(4,5-Difluorpyrimid-6-yloxy)-phenyl]-1-(methoximino)-methyl}-5,6-dihydro-1,4,2-dioxazin vom Schmelzpunkt 98°C.
- 15

Analog Beispiel (IV-1) wurde 3-{1-[2-(5-Chlor-4-fluorpyrimid-6-yloxy)-phenyl]-1-(methoximino)-methyl}-5,6-dihydro-1,4,2-dioxazin, Beispiel (IV-2), als hockviskoses Öl erhalten.

$^1\text{H-NMR}$ -Spektrum (CDCl_3/TMS): $\delta = 3,80$ (s, 3H) ppm.

Herstellung der Vorprodukte nach Formel (VI):

Beispiel (VI-1).



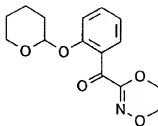
Verfahren a-2)

- 5 Eine Mischung aus 31,2 g (0,091 Mol) Methoxymethylen-triphenyl-phosphoniumchlorid und 10,2 g (0,091 Mol) Kalium-tert.-butylat in 100 ml Tetrahydrofuran wird 20 Minuten bei 20°C gerührt. Dann gibt man eine Lösung von 13,3 g (0,0457 Mol) 3-[2-(Tetrahydropyran-2-yloxy)-benzoyl]-5,6-dihydro-1,4,2-dioxazin in 100 ml Tetrahydrofuran zu und erhitzt 12 Stunden unter Rückfluß zum Sieden. Man engt die
- 10 Mischung bei vermindertem Druck ein und verteilt den Rückstand zwischen Wasser und Essigsäureethylester. Die organische Phase wird abgetrennt und über Natriumsulfat getrocknet. Der Rückstand wird mit Cyclohexan/Essigester (1:1) an Kieselgel chromatografiert. Man erhält 9,2 g (63 % der Theorie) 3-{1-[2-(Tetrahydropyran-2-yloxy)-phenyl]-2-methoxyethen-1-yl}-5,6-dihydro-1,4,2-dioxazin.
- 15

¹H-NMR-Spektrum (CDCl₃/TMS): δ = 1,5 - 1,92 (6 H); 3,5 - 4,0 (2H); 3,730 (3H); 4,056 - 4,111 (2H); 4,295 - 4,325 (2H); 5,410/5,420 (1H); 6,963 (1H); 6,950 - 7,461 (4H) ppm.

Herstellung der Vorprodukte nach Formel (VII)

Beispiel (VII-1):

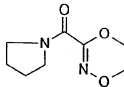


Verfahren a-3)

- 5 5 g (0,0193 Mol) 1-(Tetrahydropyran-2-yloxy)-2-brombenzol (Synthesis 1987, Seite 951) werden in 20 ml Tetrahydrofuran gelöst und auf - 40 °C gekühlt. Bei dieser Temperatur tropft man erst 10,8 g (0,0388 Mol) n-Butyllithium (23%ige Lösung in Hexan), dann eine 50 %igen Lösung von 7,2 g (0,0195 Mol) 1-(5,6-Dihydro-1,4,2-dioxazin-3-yl)-1-(pyrrolidin-1-yl)-methanon in Tetrahydrofuran zu und rührt 10
- 10 Minuten bei -40 °C. Nun tropft man eine Lösung von 4,2 g (0,0785 Mol) Ammoniumchlorid in 25 ml Wasser zu, versetzt mit Diethylether, trennt die organische Phase ab und extrahiert die wäßrige Phase mehrmals mit Diethylether. Die vereinigten organischen Phasen werden über Natriumsulfat getrocknet und bei vermindertem Druck eingeeengt. Der Rückstand kristallisiert beim Verreiben mit
- 15 Pentan. Man filtriert ab und wäscht die Kristalle zweimal mit 5 ml Diisopropylether. Man erhält 2,4 g (35,8 % der Theorie) 3-[2-(Tetrahydropyran-2-yloxy)-benzoyl]-5,6-dihydro-1,4,2-dioxazin (84% Gehalt nach HPLC-Analyse).
- 20 ¹H-NMR-Spektrum (CDCl₃/TMS): δ = 1,565-1,954 (6H); 3,54-3,68 (1H); 3,78-4,0 (1H); 4,154-4,354 (2H); 4,448-4,510 (2H); 5,512 (1H); 7,004-7,056 (1H); 7,199/7,227 (1H); 7,408-7,463 (2H) ppm.

Herstellung der Vorprodukte nach Formel (IX)

Beispiel (IX-1):



Verfahren a-4)

- 5 Man löst 44,9 g (0,8 Mol) Kaliumhydroxid in 107 ml Methanol und 27,8 g (0,4 Mol) Hydroxylammoniumchlorid in 180 ml Methanol, vereint beide Lösungen bei 35°C bis 40°C. Dann gibt man bei 10 bis 20°C 34,2 g (0,2 Mol) Oxo-pyrrolidin-1-yl-essigsäure-ethylester (EP-A 469889) zu und rührt 30 Minuten bei 20°C. Sodann gibt man 27,6 g (0,2 Mol) Kaliumcarbonat und 169,1 g (0,9 Mol) Dibrommethan zu und kocht 4 Stunden unter Rückfluß. Man filtriert von den Salzen ab, engt das Filtrat bei vermindertem Druck ein, nimmt den Rückstand in 600 ml Essigsäureethylester auf und wäscht die organische Phase sukzessive mit 50 ml gesättigter, wäßriger Natriumchlorid-Lösung und mit 50 ml halbgesättigter, wäßriger Natriumchlorid-Lösung. Man trocknet die organische Phase über Natriumsulfat, destilliert das Lösungsmittel im Vakuum ab, zuletzt im Hochvakuum bei 2 Torr und 60°C. Man erhält 20,9 g (52,2 % der Theorie) 1-(5,6-Dihydro-1,4,2-dioxazin-3-yl)-1-(pyrrolidin-1-yl)-methanon (92% Gehalt nach HPLC-Analyse).

¹H-NMR-Spektrum (CDCl₃/TMS): δ = 1,841-1,978 (4H); 3,491-3,547 (2H); 3,709-3,793 (2H); 4,166-4,194 (2H); 4,460-4,487 (2H) ppm.

Herstellung eines Vorproduktes nach Formel (XIII)

Beispiel (XIII-1)



- 5 Aus einer Mischung von 609 g Kaliumfluorid in 2,3 l Sulfolan werden zur Trocknung 500 ml Flüssigkeit bei 145°C und 20 mbar abdestilliert. Anschließend werden 1054 g 5-Chlor-4,6-difluorpyrimidin (DE-A 3843558) und 25 g Tetraphenylphosphoniumbromid zugegeben, 5 bar Stickstoff aufgedrückt und 24 Stunden bei 240°C gerührt, wobei der Druck bis 11 bar steigt. Die Reaktionsmischung wird auf 80°C gekühlt und entspannt. Nun wird die Mischung bei Normaldruck wieder langsam erhitzt, wobei
- 10 das Produkt abdestilliert. Hat die Sumpftemperatur 200°C erreicht, wird der Druck auf 150 mbar vermindert, um die Destillation zu beschleunigen und um weiteres Produkt zu erhalten. Insgesamt erhält man 664 g (70,7 % der Theorie) 4,5,6-Trifluorpyrimidin vom Siedepunkt 86 bis 87°C.

Anwendungsbeispiele

Beispiel A

Phytophthora-Test (Tomate) / protektiv

Lösungsmittel: 4,7 Gewichtsteile Aceton

5 Emulgator: 0,3 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

10 Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer wäßrigen Sporensuspension von *Phytophthora infestans* inokuliert.

Die Pflanzen werden in einer Inkubationskabine mit 100% relativer Luftfeuchtigkeit und ca. 20°C aufgestellt.

3 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung.

15 Bei diesem Test zeigen z.B. die Verbindungen (1), (2), (3), (6), (8), (10), (17), (40), (41), (43), (47), (49), (55), (63), (76), (77) und (78) der Herstellungsbeispiele bei einer Wirkstoffkonzentration von 100 ppm einen Wirkungsgrad von mehr als 90 %.

Beispiel B**Plasmopara-Test (Reben) / protektiv**

Lösungsmittel: 4,7 Gewichtsteil Aceton

Emulgator: 0,3 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykolether

- 5 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

- 10 Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer wäßrigen Sporensuspension von *Plasmopara viticola* inokuliert und verbleiben dann 1 Tag in einer Feuchtkammer bei 20 bis 22°C und 100% relativer Luftfeuchtigkeit. Anschließend werden die Pflanzen 5 Tage im Gewächshaus bei 21°C und ca. 90% Luftfeuchtigkeit aufgestellt. Die Pflanzen werden dann angefeuchtet und 1 Tag in eine Feuchtkammer gestellt.

- 15 6 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung.

- Bei diesem Test zeigen z.B. die Verbindungen der Herstellungsbeispiele (1), (2), (3), (4), (5), (6), (8), (10), (11), (14), (15), (16), (17), (18), (22), (23), (26), (28), (32), (33), (38), (39), (40), (41), (43), (45), (47), (48), (49), (53), (55), (63), (76), (77) und (78) bei einer beispielhaften Wirkstoffkonzentration von 100ppm einen Wirkungsgrad
20 bis zu 100 %.

Beispiel: C**Sphaerotheca-Test (Gurke) / protektiv**

Lösungsmittel: 4,7 Gewichtsteile Aceton

Emulgator: 0,3 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykolether

- 5 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

- 10 Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit Konidien des Pilzes *Sphaerotheca fuliginea* bestäubt.

Die Pflanzen werden anschließend bei 23 bis 24°C und bei einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 75 % im Gewächshaus aufgestellt.

10 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung.

- 15 Bei diesem Test zeigen z.B. die Verbindungen (1), (2), (3), (8), (10), (13), (15), (17), (22), (23), (26), (28), (32), (37), (41), (47), (48) und (49) der Herstellungsbeispiele bei einer Wirkstoffkonzentration von 100 ppm einen Wirkungsgrad bis zu 100 %.

Beispiel D**Venturia-Test (Apfel) / protektiv**

Lösungsmittel: 4,7 Gewichtsteile Aceton

Emulgator: 0,3 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykoether

- 5 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration

- 10 Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer wäßrigen Konidiensuspension des Apfelschorferregers *Venturia inaequalis* inokuliert und verbleiben dann 1 Tag bei 20°C und 100% relativer Luftfeuchtigkeit in einer Inkubationskabine.

Die Pflanzen werden dann im Gewächshaus bei 20°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 70% aufgestellt.

- 15 12 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung.

Bei diesem Test zeigen z.B. die Verbindungen der Herstellungsbeispiele (1), (2), (3), (4), (5), (6), (8), (10), (11), (13), (14), (15), (16), (17), (18), (22), (26), (28), (32), (33), (37), (38), (39), (41), (43), (45), (47), (48), (49), (53), (55), (63), (77) und (78) bei einer Wirkstoffkonzentration von 10 ppm einen Wirkungsgrad bis zu 100 %.

Beispiel E**Erysiphe-Test (Gerste) / protektiv**

Lösungsmittel: 10 Gewichtsteile N-Methyl-pyrrolidon

Emulgator: 0,6 Gewichtsteile Alkylarylpolglykolether

- 5 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit besprüht man junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge.

- 10 Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit Sporen von Erysiphe graminis f.sp.hordei bestäubt.

Die Pflanzen werden in einem Gewächshaus bei einer Temperatur von ca. 20°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 80 % aufgestellt, um die Entwicklung von Mehltaupusteln zu begünstigen.

- 15 7 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung.

Bei diesem Test zeigt z.B. die Verbindung (59) bei einer Wirkstoffaufwandmenge von 250 g/ha einen Wirkungsgrad von 100 % im Vergleich zur unbehandelten Kontrolle.

Beispiel F**Erysiphe-Test (Gerste) / kurativ**

Lösungsmittel: 10 Gewichtsteile N-Methyl-pyrrolidon

Emulgator: 0,6 Gewichtsteile Alkylarylpolglykolether

- 5 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

- 10 Zur Prüfung auf kurative Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit Sporen von Erysiphe graminis f.sp. hordei bestäubt. 48 Stunden nach der Inokulation werden die Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Die Pflanzen werden in einem Gewächshaus bei einer Temperatur von ca. 20°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 80 % aufgestellt, um die Entwicklung von Mehltaupusteln zu begünstigen.

7 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung.

- 15 Bei diesem Test zeigen z.B. die Verbindungen der Herstellungsbeispiele (1) und (6) bei einer Wirkstoffaufwandmenge von 250 g/ha einen Wirkungsgrad von

100 % im Vergleich zur unbehandelten Kontrolle.

Beispiel: G**Fusarium nivale (var. majus) - Test (Weizen)/protektiv**

Lösungsmittel: 10 Gewichtsteile N-Methyl-pyrrolidon

Emulator: 0,6 Gewichtsteile Alkylaryl/polyglykoether

5

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

10

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge behandelt.

Nach Antrocknen der Spritzbrühe werden die Pflanzen mit einer Konidiensuspension von *Fusarium nivale* var. *majus* besprüht.

15

Die Pflanzen werden in einem Gewächshaus unter lichtdurchlässigen Inkubationshauben bei einer Temperatur von ca. 15°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 100% gehalten.

4 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung.

20

Bei diesem Test zeigen z.B. die Verbindungen der Herstellungsbeispiele (8), (11), (14), (15), (24), (33), (41), (42) und (55) bei einer beispielhaften Wirkstoffaufwandmenge von 250 g/ha einen Wirkungsgrad von 100 % im Vergleich zur unbehandelten Kontrolle.

Beispiel: H**Fusarium nivale (var. majus) - Test (Weizen)/kurativ**

Lösungsmittel: 10 Gewichtsteile N-Methyl-pyrrolidon

5 Emulator: 0,6 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykoether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

10 Zur Prüfung auf kurative Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit einer Konidien-suspension von *Fusarium nivale* var. *majus* besprüht.

Die Pflanzen verbleiben 24 Stunden bei 15°C und 100 % rel. Luftfeuchtigkeit in einer Inkubationskabine. Anschließend besprüht man die Pflanzen mit der Wirkstoff-zubereitung in der angegebenen Aufwandmenge.

15 Nach Antrocknen der Spritzbrühe verbleiben die Pflanzen in einem Gewächshaus unter lichtdurchlässigen Inkubationshauben bei einer Temperatur von ca. 15°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 100%.

4 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung.

20 Bei diesem Test zeigt z.B. die Verbindung des Herstellungsbeispiels (43) bei einer beispielhaften Wirkstoffaufwandmenge von 250 g/ha einen Wirkungsgrad von 100 % im Vergleich zur unbehandelten Kontrolle.

Beispiel 1**Fusarium nivale (var. nivale) - Test (Weizen)/protektiv**

Lösungsmittel: 10 Gewichtsteile N-Methyl-pyrrolidon

5 Emulator: 0,6 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykoether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

10 Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge behandelt.

Nach Antrocknen der Spritzbrühe werden die Pflanzen mit einer Konidiensuspension von *Fusarium nivale* var. *nivale* besprüht.

15 Die Pflanzen werden in einem Gewächshaus unter lichtdurchlässigen Inkubationshauben bei einer Temperatur von ca. 15°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 100 % gehalten.

4 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung.

20 Bei diesem Test zeigen z.B. die Verbindungen der Herstellungsbeispiel (10), (11), (15), (24), (32), (34), (43) und (55) bei einer beispielhaften Wirkstoffaufwandmenge von 250 g/ha einen Wirkungsgrad von 100 % im Vergleich zur unbehandelten Kontrolle.

Beispiel: K**Fusarium nivale (var. nivale) - Test (Weizen)/kurativ**

Lösungsmittel: 100 Gewichtsteile Dimethylformamid

5 Emulator: 0,25 Gewichtsteile Alkylarylpolyyglykoether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

10 Zur Prüfung auf kurative Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit einer Konidien-suspension von *Fusarium nivale* var. *nivale* besprüht.

Die Pflanzen verbleiben 24 Stunden bei 15°C und 100 % rel. Luftfeuchtigkeit in einer Inkubationskabine. Anschließend besprüht man die Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung taucht.

15 Nach Antrocknen der Spritzbrühe verbleiben die Pflanzen in einem Gewächshaus unter lichtdurchlässigen Inkubationshauben bei einer Temperatur von ca. 15°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 100%.

4 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung.

20 Bei diesem Test zeigen z.B. die Verbindungen der Herstellungsbeispiel (24), (30), (31), (34) und (43) bei einer beispielhaften Wirkstoffaufwandmenge von 250 g/ha einen Wirkungsgrad von 100 % im Vergleich zur unbehandelten Kontrolle.

Beispiel L**Pseudocercospora herpotrichoides-Test (Weizen) / protektiv**

Lösungsmittel: 10 Gewichtsteile N-Methyl-pyrrolidon

Emulgator: 0,6 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykolether

- 5 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

- 10 Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit besprüht man junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen an der Halmbasis mit Sporen von *Pseudocercospora herpotrichoides* inokuliert.

Die Pflanzen werden in einem Gewächshaus bei einer Temperatur von ca. 10°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 80 % aufgestellt.

21 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung.

- 15 Bei diesem Test zeigen z.B. die Verbindungen (15), (69) und (71) der Herstellungsbeispiele bei einer Wirkstoffaufwandmenge von 250 g/ha Wirkungsgrad von 100 % im Vergleich zur unbehandelten Kontrolle.

Beispiel M**Puccinia-Test (Weizen) / protektiv**

Lösungsmittel: 10 Gewichtsteile N-Methyl-pyrrolidon

Emulgator: 0,6 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykolether

5

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

10

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit einer Sporensuspension von *Puccinia recondita* in einer 0,1%igen wäßrigen Agarlösung inokuliert. Nach Antrocknen besprüht man die Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge. Die Pflanzen verbleiben 24 Stunden bei 20°C und 100% rel. Luftfeuchtigkeit in einer Inkubationskabine.

15

Die Pflanzen werden in einem Gewächshaus bei einer Temperatur von ca. 20°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 80% aufgestellt, um die Entwicklung von Rostpusteln zu begünstigen.

10 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung.

20

In diesem Test zeigen z.B. die Verbindungen der Herstellungsbeispiele(6) und (17) bei einer Wirkstoffaufwandmenge von 250 g/ha einen Wirkungsgrad von 100 % im Vergleich zur unbehandelten Kontrolle.

Beispiel N**Pyricularia-Test (Reis) / protektiv**

Lösungsmittel: 12,5 Gewichtsteile Aceton

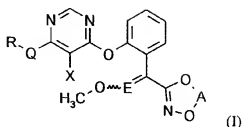
Emulgator: 0,3 Gewichtsteile Alkylarylpolglykoether

5 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und verdünnt das Konzentrat mit Wasser und der angegebenen Menge Emulgator auf die gewünschte Konzentration.

10 Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Reispflanzen mit der Wirkstoffzubereitung taufeucht bespritzt. 1 Tag nach dem Abtrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer wäßrigen Sporensuspension von *Pyricularia oryzae* inokuliert. Anschließend werden die Pflanzen in einem Gewächshaus bei 100% rel. Luftfeuchtigkeit und 25°C aufgestellt.

4 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung des Krankheitsbefalls.

15 Bei diesem Test zeigen z.B. die Verbindungen der Herstellungsbeispiele (2), (16), (17), (18), (19), (23), (24), (30), (32), (35), (41) und (48) bei einer Wirkstoffkonzentration von 0,05% einen Wirkungsgrad bis zu 100 % im Vergleich zur unbehandelten Kontrolle.

Patentansprüche**1 Verbindungen der Formel (I)**

in welcher

- 5 A für gegebenenfalls substituiertes Alkandiyl steht,
- R für jeweils gegebenenfalls substituiertes Cycloalkyl, Aryl oder
benzokondensiertes Heterocyclyl steht,
- E für -CH= oder Stickstoff steht,
- 10 Q für Sauerstoff, Schwefel, -CH₂-O-, eine Einfachbindung oder für ein
gegebenenfalls durch Alkyl substituiertes Stickstoffatom steht und
- X für Halogen steht.

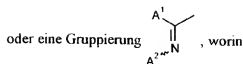
2. Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher

- A für gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkandiyl mit 1 bis 5
Kohlenstoffatomen steht,
- 15 R für jeweils gegebenenfalls einfach bis zweifach durch Halogen, Alkyl,
oder Hydroxy substituiertes Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen,

für gegebenenfalls durch Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen
substituiertes Benzodioxanyl;

oder für jeweils gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl oder Naphthyl steht, wobei die möglichen Substituenten vorzugsweise aus der nachstehenden Aufzählung ausgewählt sind:

- 5 Halogen, Cyano, Nitro, Amino, Hydroxy, Formyl, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl;
- jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Hydroxyalkyl, Oxoalkyl, Alkoxy, Alkoxyalkyl, Alkylthioalkyl, Dialkoxyalkyl, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonil mit jeweils 1 bis 8 Kohlenstoffatomen;
- 10 jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl oder Alkenyloxy mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen;
- jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl oder Halogenalkylsulfonil mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen;
- 15 jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkenyl oder Halogenalkenyloxy mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 11 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen;
- 20 jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylamino, Dialkylamino, Alkylcarbonyl, Alkylcarbonyloxy, Alkoxycarbonyl, Alkylaminocarbonyl, Dialkylaminocarbonyl, Arylalkylaminocarbonyl, Dialkylaminocarbonyloxy, Alkenylcarbonyl oder Alkinylcarbonyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den jeweiligen Kohlenwasserstoffketten;
- Cycloalkyl oder Cycloalkyloxy mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen;
- 25 jeweils gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Oxo, Methyl, Trifluormethyl oder Ethyl substituiertes, jeweils zweifach verknüpftes Alkylen mit 3 oder 4 Kohlenstoffatomen, Oxyalkylen mit 2 oder 3 Kohlenstoffatomen oder Dioxyalkylen mit 1 oder 2 Kohlenstoffatomen;



A¹ für Wasserstoff, Hydroxy oder Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder Cycloalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen steht und

A² für Hydroxy, Amino, Methylamino, Phenyl, Benzyl oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Hydroxy, Alkoxy, Alkylthio, Alkylamino, Dialkylamino oder Phenyl substituiertes Alkyl oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, oder für Alkenyloxy oder Alkinyloxy mit jeweils 2 bis 4 Kohlenstoffatomen steht,

sowie jeweils gegebenenfalls im Ringteil einfach bis dreifach durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Phenyl, Phenoxy, Phenylthio, Benzoyl, Benzoylethenyl, Cinnamoyl, Heterocyclyl, Phenylalkyl, Phenylalkyloxy, Phenylalkylthio oder Heterocyclylalkyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen in den jeweiligen Alkylteilen,

E für -CH= oder Stickstoff steht,

Q für Sauerstoff, Schwefel, eine Einfachbindung oder für ein gegebenenfalls durch Methyl, Ethyl oder n- oder i-Propyl substituiertes Stickstoffatom steht und

X für Fluor, Chlor, Brom oder Iod steht.

3. Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher

A für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituiertes Methylen, Ethan-1,1-diyl, Ethan-1,2-diyl, Propan-1,1-diyl, Propan-1,2-diyl, Propan-1,3-diyl, Butan-1,1-diyl, Butan-1,2-diyl, Butan-1,3-diyl oder Butan-2,2-diyl, steht


- R für jeweils gegebenenfalls einfach bis zweifach durch Fluor, Chlor, Methyl, Ethyl oder Hydroxy substituiertes Cyclopentyl oder Cyclohexyl,
- 5 für gegebenenfalls durch Methyl oder Ethyl substituiertes Benzodioxanyl;
- oder für jeweils gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl oder Naphthyl steht, wobei die möglichen Substituenten vorzugsweise aus der nachstehenden Aufzählung ausgewählt sind:
- 10 Fluor, Chlor, Brom, Iod, Cyano, Nitro, Amino, Hydroxy, Formyl, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl,
- Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, 1-, 2-, 3-, neo-Pentyl, 1-, 2-, 3-, 4-(2-Methylbutyl), 1-, 2-, 3-Hexyl, 1-, 2-, 3-, 4-, 5-(2-Methylpentyl), 1-, 2-, 3-(3-Methylpentyl), 2-Ethylbutyl, 1-, 3-, 4-(2,2-Dimethylbutyl), 1-, 2-(2,3-Dimethylbutyl), Hydroxymethyl, Hydroxyethyl, 3-Oxobutyl, Methoxymethyl, Dimethoxymethyl,
- 15 Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy,
- Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl,
- 20 Vinyl, Allyl, 2-Methylallyl, Propen-1-yl, Crotonyl, Propargyl, Vinyloxy, Allyloxy, 2-Methylallyloxy, Propen-1-yloxy, Crotonyloxy, Propargyloxy;
- Trifluormethyl, Trifluorethyl,
- 25 Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Difluorchlormethoxy, Trifluoroethoxy, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Difluorchlormethylthio, Trifluormethylsulfinyl oder Trifluormethylsulfonyl,

Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, Dimethylamino, Diethylamino,

Acetyl, Propionyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Methylamino-carbonyl, Ethylaminocarbonyl, Dimethylaminocarbonyl, Diethylamino-carbonyl, Dimethylaminocarbonyloxy, Diethylaminocarbonyloxy, Benzylaminocarbonyl, Acryloyl, Propioloyl,

Cyclopentyl, Cyclohexyl,

jeweils gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Oxo, Methyl oder Trifluormethyl substituiertes, jeweils zweifach verknüpftes Propandiyl, Ethylenoxy, Methylendioxy, Ethylendioxy

oder eine Gruppierung  , wobei

A¹ für Wasserstoff, Methyl oder Hydroxy steht und

A² für Hydroxy, Methoxy, Ethoxy, Amino, Methylamino, Phenyl, Benzyl oder Hydroxyethyl steht, sowie

sowie jeweils gegebenenfalls im Ringteil einfach bis dreifach durch Halogen, und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl oder Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Phenyl, Phenoxy, Phenylthio, Benzoyl, Benzoylethenyl, Cinnamoyl, Benzyl, Phenylethyl, Phenylpropyl, Benzylloxy, Benzylthio, 5,6-Dihydro-1,4,2-dioxazin-3-ylmethyl, Triazolylmethyl, Benzoxazol-2-ylmethyl, 1,3-Dioxan-2-yl, Benzimidazol-2-yl, Dioxol-2-yl, Oxadiazolyl,

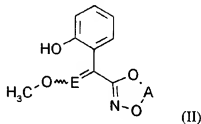
E für -CH= oder Stickstoff steht,

Q für Sauerstoff, Schwefel, eine Einfachbindung oder für ein gegebenenfalls durch Methyl substituiertes Stickstoffatom steht und

X für Fluor oder Chlor steht

4. Schädlingsbekämpfungsmittel, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einer Verbindung der Formel (I) nach Anspruch 1
5. Verfahren zur Bekämpfung von Schädlingen, dadurch gekennzeichnet, daß man Verbindungen der Formel (I) nach Anspruch 1 auf Schädlinge und/oder ihren Lebensraum einwirken läßt.
6. Verwendung von Verbindungen der Formel (I) nach den Ansprüchen 1 bis 4 zur Bekämpfung von Schädlingen
7. Verfahren zur Herstellung von Schädlingsbekämpfungsmitteln, dadurch gekennzeichnet, daß man Verbindungen der Formel (I) nach den Ansprüchen 1 bis 3 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Mitteln vermischt.
8. Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man

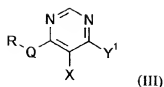
a) Hydroxyverbindungen der allgemeinen Formel (II)



in welcher

A und E die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

mit einem substituierten Halogenpyrimidin der allgemeinen Formel (III),



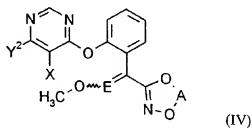
in welcher

R, Q und X die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

Y¹ für Halogen steht,

- 5 gegebenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, umgesetzt, oder daß man

b) Phenoxyypyrimidine der allgemeinen Formel (IV)

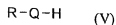


10 in welcher

A, E und X die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

Y² für Halogen steht,

mit einer Ringverbindung der allgemeinen Formel (V),

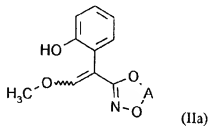


15 in welcher

R und Q die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, umgesetzt.

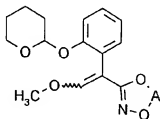
9. Verbindungen der allgemeinen Formel (IIa),



in welcher

A die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung hat.

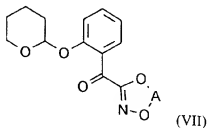
10. Verbindungen der allgemeinen Formel (VI),



in welcher

A die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung hat.

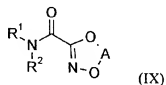
11. Verbindungen der Formel (VII)



in welcher

A die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung hat

12. Verbindungen der Formel (IX),



5

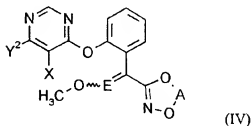
in welcher

A die in Anspruch 1 oben angegebene Bedeutung hat und

R¹ und R² gleich oder verschieden sind und für Alkyl stehen, oder
gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, für einen
3 bis 8-gliedrigen, gesättigten, heterocyclischen Ring stehen.

10

13. Verbindungen der Formel (IV)



in welcher

A, E und X die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

Y² für Halogen steht.

15

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 6 C07D413/12 C07D273/00 C07D413/14 A01N43/88		Inter. nal Application No PCT/EP 97/00151
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 6 C07D		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	DE 44 08 005 A (BAYER) 16 February 1995 cited in the application see the whole document ---	1,4-8
P,A	DE 195 01 842 A (BAYER) 25 July 1996 see claims; examples 4,7,9 -----	1,4-8
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C. <input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex.		
* Special categories of cited documents : <div style="display: flex; justify-content: space-between;"> <div style="width: 45%;"> <p>'A' document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>'E' earlier document but published on or after the international filing date</p> <p>'L' document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</p> <p>'O' document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>'P' document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p> </div> <div style="width: 45%;"> <p>'T' later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention</p> <p>'X' document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone</p> <p>'Y' document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.</p> <p>'&' document member of the same patent family</p> </div> </div>		
Date of the actual completion of the international search <div style="text-align: center; font-weight: bold;">19 March 1997</div>		Date of mailing of the international search report <div style="text-align: center; font-weight: bold;">26.03.1997</div>
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer <div style="text-align: center; font-weight: bold;">Francois, J</div>

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

information on patent family members

International Application No

PCT/EP 97/00151

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
DE 4408005 A	16-02-95	AU 7497294 A	28-02-95
		BR 9407239 A	24-09-96
		CN 1132507 A	02-10-96
		CZ 9600370 A	15-05-96
		WO 9504728 A	16-02-95
		EP 0712396 A	22-05-96
		NO 960514 A	08-02-96
		NZ 271366 A	28-10-96
		PL 312965 A	27-05-96
		SK 16696 A	05-06-96
		ZW 8594 A	12-10-94
		ZA 9405991 A	13-03-95
DE 19501842 A	25-07-96	AU 4485096 A	14-08-96
		WO 9622983 A	01-08-96

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationale Aktenzeichen

PCT/EP 97/00151

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 6 C07D413/12 C07D273/00 C07D413/14 A01N43/88

Nach der internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 6 C07D

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Benennung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	DE 44 08 005 A (BAYER) 16. Februar 1995 in der Anmeldung erwähnt siehe das ganze Dokument	1,4-8
P,A	DE 195 01 842 A (BAYER) 25. Juli 1996 siehe Ansprüche; Beispiele 4,7,9	1,4-8

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen ☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

E älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

L Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

O Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung,

eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

P Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

X Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

Z Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

19. März 1997

Abschlußdatum des internationalen Recherchenberichts

26. 03. 97

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2200 HV Rijswijk
Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tlx. 31 651 epo nl,
Fax (+ 31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Beauftragter

Francois, J

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 97/00151

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
DE 4408005 A	16-02-95	AU 7497294 A	28-02-95
		BR 9407239 A	24-09-96
		CN 1132507 A	02-10-96
		CZ 9600370 A	15-05-96
		WO 9504728 A	16-02-95
		EP 0712396 A	22-05-96
		NO 960514 A	08-02-96
		NZ 271366 A	28-10-96
		PL 312965 A	27-05-96
		SK 16696 A	05-06-96
		ZN 8594 A	12-10-94
		ZA 9405991 A	13-03-95
DE 19501842 A	25-07-96	AU 4485096 A	14-08-96
		WO 9622983 A	01-08-96